

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **11144740 A**(43) Date of publication of application: **28 . 05 . 99**

(51) Int. Cl.

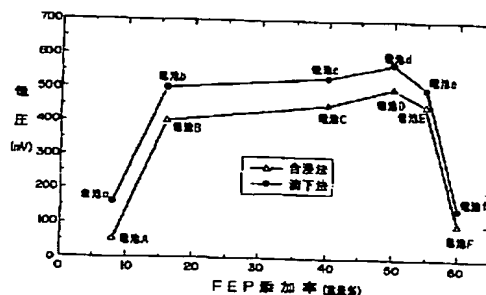
H01M 4/86**H01M 8/02**(21) Application number: **09305425**(22) Date of filing: **07 . 11 . 97**(71) Applicant: **MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD**(72) Inventor: **SUGAWARA YASUSHI
UCHIDA MAKOTO
OBARA HIDEO
FUKUOKA HIROKO
EDA NOBUO**(54) **SOLID HIGH-MOLECULAR FUEL CELL**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a PEFC, which can be operated by a non-humidified gas, without hindering the gas diffusion by containing the water to be generated by a positive electrode in a high molecular electrolyte, while improving the water-holding property inside a junction (MEA) of a high molecular electrolyte film and a gas diffusing electrode.

SOLUTION: A gas diffused layer obtained by adding fluororesin at 16-55 wt.% to the conductive porous material is used for at least one of a positive and a negative electrodes, so as to improve the water holding property inside a MEA without hindering the gas diffusion. The water generated in the positive electrode can be contained in the high molecular electrolyte, and a PEFC to be operated by the non-humidified gas is realized.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO



(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-144740

(43)公開日 平成11年(1999) 5月28日

(51)Int.Cl.⁶

識別記号

F I

H 0 1 M 4/86
8/02H 0 1 M 4/86
8/02B
E

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 8 頁)

(21)出願番号 特願平9-305425

(22)出願日 平成9年(1997)11月7日

(71)出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72)発明者 菅原 靖

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 内田 誠

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 小原 英夫

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74)代理人 弁理士 滝本 智之 (外1名)

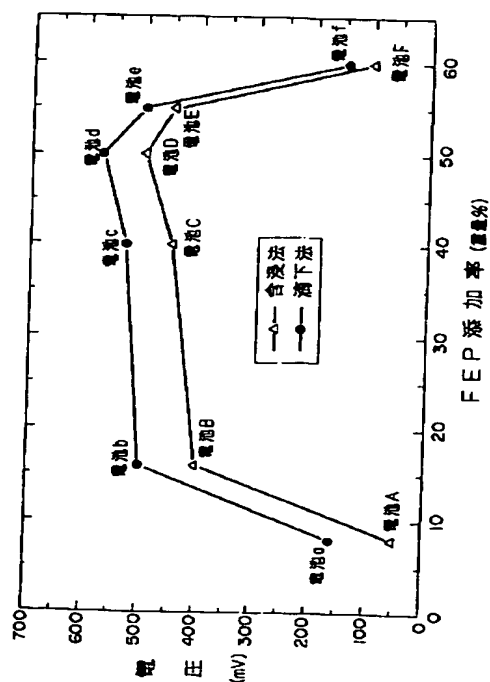
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 固体高分子型燃料電池

(57)【要約】

【課題】 ガス拡散を阻害することなく、高分子電解質膜とガス拡散電極の接合体 (M E A) 内部の保水性を向上させ正極で生成する水で高分子電解質を含水させることにより、無加湿のガスによる作動が可能な P E F C を提供することを課題とする。

【解決手段】 導電性多孔質材料にフッ素樹脂を 1 6 ~ 5 5 重量%添加したガス拡散層を正極および負極のうち少なくとも一方に適用することにより、ガス拡散を阻害することなく M E A 内部の保水性を向上させ、正極で生成する水で高分子電解質を含水させることが可能となり、無加湿のガスにより作動する P E F C を実現する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 高分子電解質膜の両側に触媒層とガス拡散層とからなる正極および負極を配置し、前記正極には無加湿の空気または酸素を、負極には無加湿の水素または水素を含む改質ガスを供給して作動する固体高分子型燃料電池において、前記正極および負極のうち少なくとも一方のガス拡散層は導電性多孔質材料にフッ素樹脂を 16～55 重量%添加したことを特徴とする固体高分子型燃料電池。

【請求項 2】 前記ガス拡散層の気孔率が 45～75%である請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項 3】 前記ガス拡散層は直径が 17～90 μm である細孔の比容積が 0.45～1.25 cm^3/g である請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項 4】 前記フッ素樹脂がテトラフルオロエチレンとヘキサフルオロプロピレンとの共重合体である請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項 5】 前記導電性多孔質材料がポリアクリロニトリルを原料とする炭素繊維からなる炭素紙である請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項 6】 前記正極および負極のうち少なくとも一方が、有機溶媒に貴金属触媒を担持した炭素粉末を分散させて分散液を得る工程と、前記分散液と高分子電解質のアルコール溶液とを混合し高分子電解質のコロイドを生成させるとともに前記コロイドを前記炭素粉末に吸着させた混合液を得る工程と、この混合液を上記ガス拡散層の片面に塗布する工程とにより作製された電極である請求項 1 記載の固体高分子型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

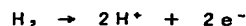
【発明の属する技術分野】 本発明は、燃料として純水素、あるいはメタノールまたは化石燃料からの改質水素などの還元剤を用い、空気や酸素の酸化剤を反応ガスとする固体高分子型燃料電池（以下 P E F C とする）に関するものであり、特に無加湿の反応ガスにより作動する P E F C に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 P E F C は電解質である高分子電解質膜とガス拡散電極との接合体（以下 M E A とする）からなり、図 1 に示すように正極 4、負極 5 でそれぞれ（化 1）、（化 2）の反応が起こっている。

【0003】

【化 1】



【0004】

【化 2】



【0005】 上記反応が起こる際、負極で発生したプロトンが高分子電解質膜 1 を介して正極へ移動する。高分子電解質は十分に含水した状態でなければ高いイオン伝

導性を示さないもので、乾燥を防ぐために一般的には加湿器などを用いて常に反応ガスを加湿する必要がある。また、高電流密度を得るために電極のガス拡散層 2 は高いガス透過性が必要とされる。そのため、ガスの拡散経路が閉塞されないように過剰な水分を M E A 外部に排出しなければならない。たとえば、特開平 6-295728 号公報ではフッ素樹脂により撥水処理を行ったポリアクリロニトリルを原料とする炭素繊維からなる炭素紙をガス拡散層に用いている。また、特開平 7-134993 号公報では燃料極の拡散層は触媒層 3 側ほど疎水性が低くなるように疎水性に傾斜を設け、正極の拡散層は触媒層側ほど疎水性が高くなるように疎水性に傾斜を設けている。この構造により燃料極側の高分子電解質の含水率の低下を防ぎ、正極側の生成水により触媒層が濡れガスの拡散経路を塞ぐ状態であるフラディングを防いでいる。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、従来の加湿されたガスによって作動する P E F C は、過剰な水分は M E A 外に排出するように設計されているため、無加湿のガスをういて作動させると高分子電解質膜および触媒層中の高分子電解質が乾燥し、プロトンの移動が起こりにくくなる。さらに、触媒層中の高分子電解質が収縮し、白金触媒を被覆している面積すなわち反応面積が減少し、その結果 P E F C の内部抵抗が増大するため、高い特性は得られない。また、無加湿のガスによる P E F C の作動は加湿ガスによる作動とは異なり正極における生成水によるフラディングは起こりにくいので、正極で生成される水を M E A 外部に排出することなく M E A 内部に保持することが重要である。特開平 7-134993 号公報による構造においても無加湿ガスによって作動すると正極からの水分の蒸発が大きいと同様に内部抵抗が増大する。

【0007】 本発明はガス拡散を阻害することなく、M E A 内部の保水性を向上させることにより、正極で生成する水をういて高分子電解質を含水させることを可能とするものであり、その結果、無加湿のガスにより P E F C の作動が可能となる。以上のように、本発明は無加湿ガスによる作動が可能な P E F C を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】 上記課題を解決するために本発明は、無加湿の空気または酸素と無加湿の水素または水素を含む改質ガスをういて作動する P E F C において、導電性多孔質材料にフッ素樹脂を 16～55 重量%添加したガス拡散層を正極および負極のうち少なくとも一方に用いることにより、ガス拡散を阻害することなく M E A 内部の保水性を向上させ、正極で生成する水で高分子電解質を含水させることを可能とするものである。

【0009】本発明によれば、ガス拡散を阻害することなく、またMEA内部の保水性に優れているため、正極で生成する水で高分子電解質を含水させることができ、無加湿ガスによる作動が可能なPEFCを得られる。

【0010】ガス拡散層は、気孔率が45～75%である。また、ガス拡散層は、直径が17～90 μ mである細孔の比容積が0.45～1.25cc/gである。

【0011】フッ素樹脂としては、テトラフルオロエチレンとヘキサフルオロプロピレンとの共重合体を用いる。

【0012】導電性多孔質材料としては、ポリアクリロニトリルを原料とする炭素繊維からなる炭素紙を用いる。

【0013】また、前記PEFCにおける正極および負極のうち少なくとも一方に、有機溶媒に貴金属触媒を担持した炭素粉末を分散させて分散液を得る工程と、前記分散液と高分子電解質のアルコール溶液とを混合し高分子電解質のコロイドを生成させるとともに前記コロイドを前記炭素粉末に吸着させた混合液を得る工程と、この混合液を上記ガス拡散層の片面に塗布する工程とにより作製された電極を用いる。

【0014】

【発明の実施の形態】本発明の請求項1に記載の発明は、高分子電解質膜の両側に正極および負極を配置し、その正極および負極は触媒層とガス拡散層とからなり、正極には無加湿の空気または酸素を、負極には無加湿の水素または水素を含む改質ガスを供給して作動する固体高分子型燃料電池において、前記正極および負極のうち少なくとも一方のガス拡散層は導電性多孔質材料にフッ

$$U_F = \frac{W_{S+F} - W_S}{W_{S+F}}$$

U_F [重量%] : ガス拡散層の添加フッ素樹脂添加率

W_S [kg] : 多孔質導電材の重量

W_{S+F} [kg] : 撥水处理後の多孔質導電材(多孔質導電材+フッ素樹脂)の重量

【0020】また、撥水处理を施したガス拡散層の気孔率が45～75体積%のとき、ガス拡散を阻害することなくガス拡散層の撥水性を高め、MEA内部の保水性を高める効果があり、高性能なPEFCを得ることができる。さらに好ましくは、気孔率が50～70体積%である。

【0021】また、撥水处理を施したガス拡散層は直径が17～90 μ mの細孔の比容積が0.45～1.25cc/gのとき、ガス拡散を阻害することなくガス拡散層の撥水性を高め、MEA内部の保水性を高める効果があり、高性能なPEFCを得ることができる。さらに好ましくは、直径が17～90 μ mの細孔の比容積が0.55～0.80cc/gである。

【0022】さらにフッ素樹脂としては、テトラフルオ

素樹脂を16～55重量%添加した固体高分子型燃料電池であり、ガス拡散を阻害することなく、またMEA内部の保水性に優れているため、正極で生成する水で高分子電解質を含水させることができる、無加湿ガスによる作動が可能なPEFCを得られる。

【0015】フッ素樹脂添加率が少ないとガス拡散層の撥水性が低くなるため、正極の触媒層で生成、凝集した水がガス拡散層を通り抜けMEA外部に排出されやすくなる。その結果、MEAが乾燥し高分子電解質の含水率が低下することにより、内部抵抗が低下し、電圧が低下する。

【0016】一方、フッ素樹脂添加率が多いとガス拡散層では撥水性が高くなりかつ気孔率が低下するため、ガス拡散層がMEAの蓋のように作用し、液体となった水はガス拡散層を通過しにくくなる。しかしながら、ガス透過能も同様に低下するため、反応ガスの拡散律速となるり電圧が低下する。

【0017】この様に無加湿ガスにより作動する高性能なPEFCは、拡散層の撥水性とガス透過能のバランスが重要であり、ガス拡散を阻害することなくガス拡散層の撥水性を高め、MEA内部の保水性を高めるにはフッ素樹脂を16～55重量%添加すると効果がある。さらに好ましくは、フッ素樹脂添加量が40～50重量%である。

【0018】ガス拡散層のフッ素樹脂添加率は(数1)の式で求められるものである。

【0019】

【数1】

ロエチレンとヘキサフルオロプロピレンとの共重合体を用いると、より高性能なPEFCを得ることができる。

【0023】また導電性多孔質材料としては、ポリアクリロニトリルを原料とする炭素繊維からなる炭素紙を用いると、より高性能なPEFCを得ることができる。

【0024】また、PEFCにおける正極および負極のうち少なくとも一方に、有機溶媒に貴金属触媒を担持した炭素粉末を分散させて分散液を得る工程と、前記分散液と高分子電解質のアルコール溶液とを混合し高分子電解質のコロイドを生成させるとともに前記コロイドを前記炭素粉末に吸着させた混合液を得る工程と、この混合液を上記ガス拡散層の片面に塗布する工程とによる滴下法により作製された電極を用いる。

【0025】ガス拡散電極の作製方法の違いにより触媒

層における高分子電解質の分散性が異なり、PEFC特性に影響を与える。本発明のフッ素樹脂添加率による効果をより向上させるには上記滴下法が良い。滴下法では高分子電解質が薄く、高分散に白金担持炭素粉末に吸着するため、触媒層の高分子電解質のネットワークが全体に網目状に発達している。無加湿ガスによるPEFCの作動においては、このような触媒層の状態が触媒層に停留している生成水を効率良く高分子電解質膜に戻す働きをし、より高性能なPEFCを得ることができる。

【0026】以下、本発明の実施の形態に基づいて得られるPEFCについて説明する。

(実施の形態1) 図2(a)に示すガス拡散電極作製方法(以下含浸法とする)に従い、以下の様にMEAを作製した。

【0027】まず、白金触媒を担持させた炭素粉末をPTFEを添加することにより撥水处理した炭素微粉末と混合した。この触媒用混合粉末をあらかじめテトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体(以下FEPとする)を16~55重量%溶着してなるポリアクリロニトリルを原料とする炭素繊維からなる炭素紙の片面に散布し、340~380℃、5~20kgf/cm²でホットプレスしてガス拡散電極を得た。

【0028】上記ガス拡散電極への高分子電解質の添加は、イソプロピルアルコール2mLあたりNa⁺ion溶液0.05~1.5gを混合した溶液をカーボンペーパー側からポンプによって吸引した状態で塗布し乾燥する方法を用いた。

【0029】上記ガス拡散電極2枚で高分子電解質膜を挟持しホットプレス機を用いて120~170℃、50kgf/cm²でホットプレスした。以上の工程により得られたMEAはガス拡散を阻害することなく、またMEA内部の保水性に優れているため、正極で生成する水で高分子電解質を含水させることができる、無加湿ガスによる作動が可能なPEFCを得られる。

【0030】(実施の形態2) 図2(b)に示すガス拡散電極作製方法(以下滴下法とする)に従い、以下の様にMEAを作製した。

【0031】まず、白金触媒を担持させた炭素粉末をPTFEを添加することにより撥水处理した炭素微粉末と混合した。この触媒用混合粉末をn-酢酸ブチルに混合し、白金触媒の分散液を得る。上記分散液をマグネティックスターラーで攪拌しながら、高分子電解質のアルコール溶液を滴下し、続いて超音波分散器を用いてペースト状にした。このペーストをあらかじめFEPを16~55重量%溶着してなるポリアクリロニトリルを原料とする炭素繊維からなる炭素紙の片面に塗着した後、乾燥してガス拡散電極を得た。上記ガス拡散電極2枚で高分子電解質膜を挟持しホットプレス機を用いて120~170℃、50kgf/cm²でホットプレスした。

【0032】以上の工程により得られたMEAはガス拡

散を阻害することなく、また(実施の形態1)に示したPEFCより高分子電解質が触媒層中に薄く、高分散に吸着しているため、MEA内部の保水性がより優れている。その結果、正極で生成する水で高分子電解質をより効率良く含水させることができる、無加湿ガスによる作動が可能なPEFCを得られる。

【0033】

【実施例】次に本発明の具体例を説明する。

【0034】(実施例1) フッ素樹脂としてFEPを用い、FEP添加量を8~60重量%のガス拡散層を作製した。

【0035】作製方法は、ポリアクリロニトリルを原料とする炭素繊維からなる炭素紙として(株)東レ製のカーボンペーパーを、ダイキン工業(株)の商品名“ND-1”をイオン交換水で希釈したFEP分散液に浸漬し、焼成することによりFEPをカーボンペーパーに溶着させた。ND-1の希釈度を調整することにより表1に示すFEP添加量を8~60重量%のガス拡散層A~Fを作製した。

【0036】

【表1】

	FEP添加量 [重量%]
ガス拡散層 A	8
B	16
C	40
D	50
E	55
F	60

【0037】作製したガス拡散層A~Fの圧力損失を測定し、FEP添加率とガス拡散層の圧力損失の関係を図3に示した。その結果、FEP添加率が高くなるとガス拡散層の圧力損失が増加した。

【0038】次に、ガス拡散層A~Fの気孔率および細孔分布を水銀圧入法により測定した。

【0039】図4にFEP添加量とガス拡散層の気孔率との関係を示した。その結果、FEP添加率が高くなると気孔率が低下し、細孔にFEPが充填していることがわかる。

【0040】図5にガス拡散層A~Fの各々の細孔分布を示した。その結果、直径17~90μmに大きなピークが見られ、このピークはFEP添加率の増加に伴って細孔比容積が減少した。これにより、カーボンペーパーにおいて直径が17~90μmの細孔が主であり、FEPはこの径の細孔に分布していることがわかった。

【0041】表2にガス拡散層A~FのFEP添加率に対する気孔率と、直径が17~90μmの細孔比容積をまとめたものを示す。

【0042】

【表2】

ガス拡散層	A	B	C	D	E	F
F E P 添加率 (重量%)	8	16	40	50	55	60
気孔率 (体積%)	80	75	70	50	45	25
細孔径 17~90 μm の 細孔比容積 (cc/g)	1.38	1.25	0.80	0.55	0.45	0.30

【0043】(実施例2) 実施例1で作製したガス拡散層A~Fを用いて図2(a)の含浸法に従い、以下のようにしてPEFCを作製した。

【0044】白金触媒を10~30wt%担持させた炭素粉末と、PTFEを25~70重量%添加することによって撥水処理した炭素微粉末とを8:2~5:5の範囲で混合した。この触媒層用混合粉末を、実施例1のF E P添加量が8~60重量%のガス拡散層の片面に散布し、340~380℃、5~20kgf/cm²でホットプレスした。この電極への高分子電解質の添加は、イソプロピルアルコール2mlあたり米国アルドリッチケミカル社製の商品名“5% Nafion溶液”を0.05~1.5g混合した溶液をカーボンペーパー側からポンプによって吸引した状態で塗布し、乾燥する方法を用いた。上記電極2枚で高分子電解質膜としての米国デュポン社製のNafion112を挟持し、ホットプレス機を用いて120~170℃、50kgf/cm²でホットプレスした。白金および高分子電解質の添加量は、両極とも見かけ電極面積当たりそれぞれ0.5mg/cm²および1.0mg/cm²である。このMEAを用いて構成したPEFCを電池A~Fとする。

【0045】(実施例3) 実施例1で作製したガス拡散層A~Fを用いて図2(b)の含浸法に従い、以下のようにしてPEFCを作製した。

【0046】白金触媒を10~30wt%担持させた炭素粉末と、PTFEを25~70重量%添加することによって撥水処理した炭素微粉末とを8:2~5:5の範囲で混合した。この触媒層用混合粉末を、n-酢酸ブチルに白金とn-酢酸ブチルの重量比が1:120となるように混合し、白金触媒の分散液を得る。上記分散液をマグネティックスターラーで攪拌しながら、高分子電解質のアルコール溶液を白金量と高分子電解質量が1:2となるまで滴下し、続いて超音波分散器を用いてペースト状にした。高分子電解質のアルコール溶液は米国アルドリッチケミカル社製の商品名“5% Nafion溶液”を用いた。このペーストを上記のF E P添加量が16重量%のガス拡散層の片面に塗着した後、乾燥してガス拡散電極を得た。上記電極2枚で高分子電解質膜としての米国デュポン社製のNafion112を挟持し、ホットプレス機を用いて120~170℃、50kgf/cm²でホットプレスした。白金および高分子電解質の添加量は、両極とも見かけ電極面積当たりそれぞれ0.5mg/cm²および1.0mg/cm²である。このMEAを用いて構成したPEFCを電池a~fとする。

る。

【0047】上記実施例1の含浸法により作製した電池A~Fと、実施例2の滴下法により作製した電池a~fの負極に水素ガスを、正極に空気を共に無加湿で供給し、0.2A/cm²の定電流放電を行った。

【0048】図6にガス拡散層へのF E P添加率と電池A~Fおよび電池a~fの電流値0.2A/cm²での電圧の関係を示した。その結果、実施例2の含浸法により作製した電池A~Fにおいて、F E P添加率が16~55重量%で電圧が0.4V以上となり、特に40~50重量%で高い電圧を示した。また、F E P添加率が8重量%および60重量%では電池電圧が100mV以下と著しく低くなった。一方、実施例3の滴下法により作製した電池a~fにおいて、F E P添加率が16~55重量%で電圧が0.5V以上となり、特に40~50重量%で高い電圧を示した。またF E P添加率が8重量%および60重量%では電池電圧が150mVと著しく低くなった。含浸法、滴下法のどちらの作製方法で作製した電池においても、F E P添加率に対し電池電圧は同様の挙動を示したが、滴下法で作製した電池の方がそれぞれのF E P添加率で50~100mV高い電圧を示している。

【0049】図7にガス拡散層へのF E P添加率と電池の内部抵抗の関係を示した。含浸法、滴下法のどちらの作製方法で作製した電池においても、F E P添加率が増加すると電池の内部抵抗は減少した。特にF E P添加率が8重量%から16重量%に増加するとき、抵抗値の減少が大きい。また含浸法で作製した電池の内部抵抗は、F E P添加率全域に渡って滴下法で作製した電池の内部抵抗より高くなった。

【0050】以上、F E P添加率が上がると圧力損失が増加していることから、ガス拡散層のガス透過性が低下、すなわちガスが拡散しにくくなると考えられる。この圧力損失の増加は気孔率の低下、すなわちF E Pのガス拡散層の細孔への充填によるものと考えられる。また、ガス拡散層は直径17~90 μm の細孔が主であり、F E P添加率が上がると直径17~90 μm の細孔の比容積が減少していることから、ガスはこの直径の細孔によって供給され、F E Pはこの径の細孔に充填されると考えられる。

【0051】このため、F E P添加量が8重量%のガス拡散層は、F E P添加率が少なく撥水性が低いため、正極の触媒層で生成、凝集した水がガス拡散層を通り抜けMEA外部に排出され易い。その結果、MEAが乾燥し

て高分子電解質の含水率が低下し、イオン伝導性が低下して、PEFCの内部抵抗が増加したと考えられる。この内部抵抗の増加により電圧が低下したと考えられる。

【0052】一方、FEP添加率が60重量%のガス拡散層では撥水性が高くかつ気孔率が低いため、ガス拡散層が蓋のように作用し、液体となった水はガス拡散層を通過しにくい。すなわち正極の触媒層で生成、凝集した水はMEA外部に排出されにくい。その結果、正極触媒層中の高分子電解質を介して高分子電解質膜および燃料極触媒層中の高分子電解質に供給でき、MEAの保水性は高いと考えられる。そのため高分子電解質の含水率が高く、イオン伝導度が高くなるのでFEP添加率が高いとPEFCの内部抵抗が低くなると考えられる。しかし、ガス透過能が低すぎるため、反応ガスの拡散律速により電圧が低下したと考えられる。

【0053】よって、FEP添加率16～55重量%のガス拡散層を用いた電池では、反応ガスの供給および生成水による加湿が十分であるため、高い電圧を示したと考えられる。

【0054】また、ガス拡散電極の作製方法による特性の違いはその触媒層における高分子電解質の分散性によるものと考えられる。含浸法の電池に対して滴下法の電池の方が高分子電解質が薄く、高分散に白金担持炭素粉末に吸着するため、触媒層の高分子電解質のネットワークが発達している。無加湿ガスによるPEFCの作動においては、このような触媒層の状態が触媒層に滞留している生成水を効率よく高分子電解質膜に戻す働きをしていると考えられる。

【0055】以上より、無加湿のガスによる作動において高性能なPEFCを作製するには、拡散層の撥水性とガス透過能のバランスが重要であり、ガス拡散を阻害することなくガス拡散層の撥水性を高め、MEA内部の保水性を高めるにはFEP添加量が16～55重量%のとき、あるいは撥水処理を施したガス拡散層の気孔率が45～75体積%のとき、あるいは撥水処理を施したガス拡散層の直径が17～90 μ mの細孔の比容積が0.45～1.25cc/gのとき効果があつたが、特にFEP添加量が40～50重量%のとき、あるいは撥水処理を施したガス拡散層の気孔率が50～70体積%のとき、あるいは撥水処理を施したガス拡散層の細孔径が17～90 μ mの細孔比容積が0.55～0.80cc/gのときその効果が顕著であつた。加えて滴下法によりガス拡散電極を作製することにより、触媒層中の高分子電解質が薄く高分散に吸着し、無加湿ガスによる作動においてより高性能なPEFCを得ることができる。

【0056】なお、本実施例ではフッ素樹脂としてFEPを用いたが、他の撥水性を有するフッ素樹脂、例えばポリテトラフルオロエチレン、テトラフルオロエチレン

ーパーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体、テトラフルオロエチレンーエチレン共重合体などを用いても同様の効果が得られる。

【0057】また、本実施例においては白金触媒、高分子電解質、有機溶媒から成るペーストを調製し、撥水処理を施したカーボンペーパーに塗布、乾燥しガス拡散電極としたが、本発明は製造方法に関わらず、少なくとも貴金属触媒、高分子電解質を含むガス拡散電極全般に適用できるものである。

【0058】また、本実施例においては導電性多孔質材料としてポリアクリロニトリルを材料とする炭素繊維からなる炭素紙を用いたが、例えばカーボンクロス、セルロース系の炭素紙など多孔質導電材全般に適用できるものである。

【0059】また、本実施例においては高分子電解質としてパーフルオロカーボンスルホン酸樹脂を用いたが、パーフルオロカーボン酸樹脂、スチレンージビニルベンゼンスルホン酸樹脂、スチレンーブタジエンスルホン酸樹脂等のカチオン交換樹脂全般に適用できるものである。

【0060】

【発明の効果】以上のように本発明によれば、ガス拡散を阻害することなく、MEA内部の保水性を向上させ正極で生成する水で高分子電解質を含水させることにより、無加湿作動に適したPEFC用電極、およびPEFCを得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】固体高分子型燃料電池の概略図

【図2】(a)含浸法によるガス拡散層の作製法を示す図

(b)滴下法によるガス拡散層の作製法を示す図

【図3】FEP添加率とガス拡散層の圧力損失の関係を示す図

【図4】FEP添加率とガス拡散層の気孔率の関係を示す図

【図5】各FEP添加率におけるガス拡散層の細孔分布を示す図

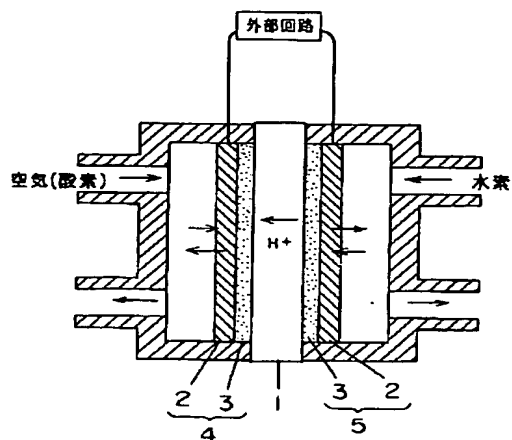
【図6】ガス拡散層へのFEP添加率と電池の0.2A/cm²での電圧の関係を示す図

【図7】ガス拡散層へのFEP添加率と電池の0.2A/cm²での抵抗の関係を示す図

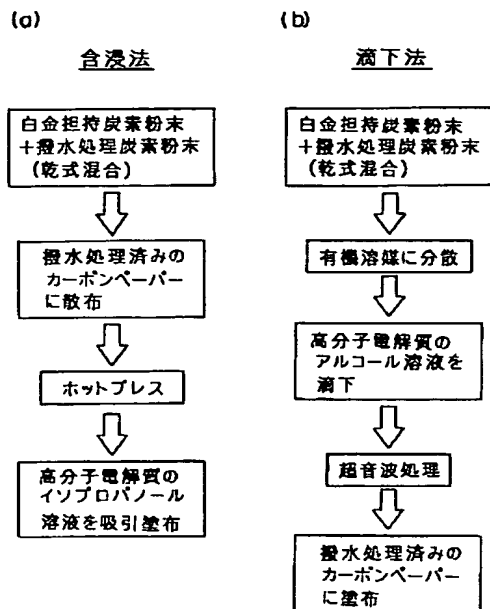
【符号の説明】

- 1 高分子電解質膜
- 2 ガス拡散層
- 3 触媒層
- 4 正極
- 5 負極

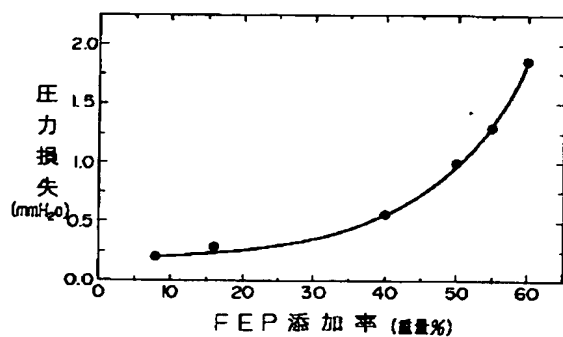
【図1】



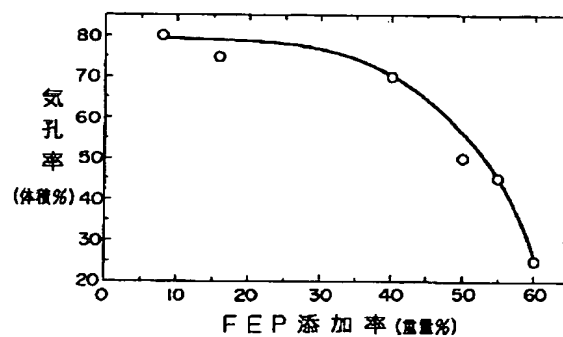
【図2】



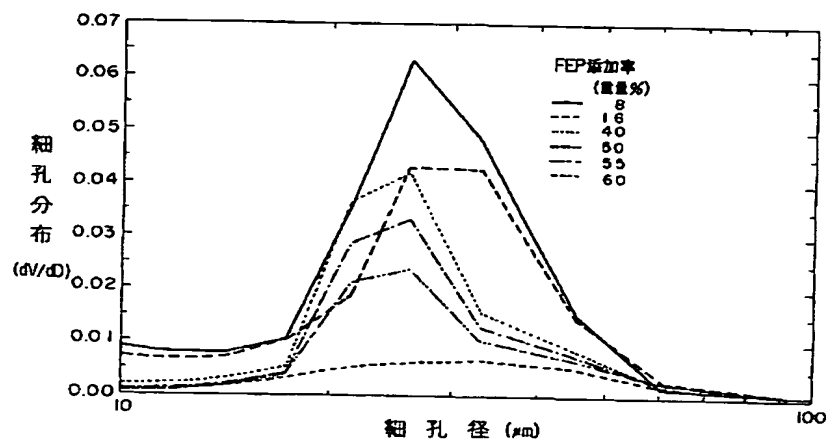
【図3】



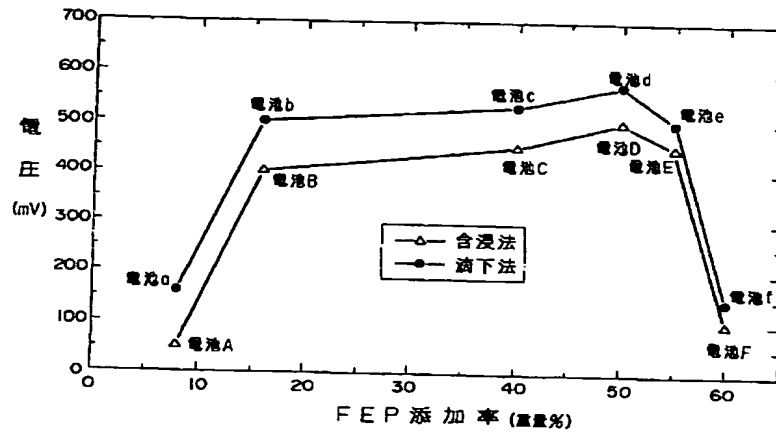
【図4】



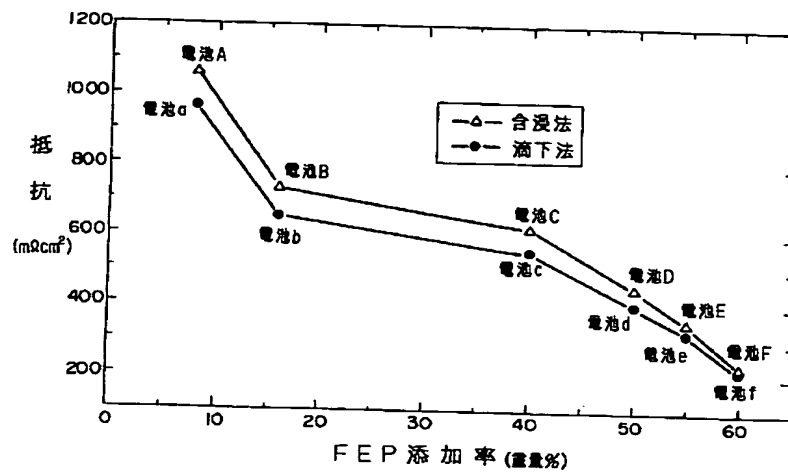
【図5】



【図6】



【図7】



フロントページの続き

(72)発明者 福岡 裕子
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72)発明者 江田 信夫
大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内